



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	Co基ホイスラー合金薄膜を用いた電流面直型巨大磁気抵抗素子におけるスピン依存伝導特性 [全文の要約]
Author(s)	井上, 将希
Description	この博士論文全文の閲覧方法については、以下のサイトをご参照ください。 https://www.lib.hokudai.ac.jp/dissertations/copy-guides/
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(工学)
Dissertation Number	甲第14128号
Issue Date	2020-03-25
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/78613
Type	doctoral thesis
File Information	Masaki_Inoue_summary.pdf



博士論文

Co 基ホイスラー合金薄膜を用いた
電流面直型巨大磁気抵抗素子における
スピン依存伝導特性 (要約)

Spin-dependent transport properties of current-perpendicular-to-plane
giant magnetoresistance devices with Co-based Heusler alloy thin films

北海道大学大学院情報科学研究科

井上 将希

令和 2 年 2 月

1. 背景および目的

現在の情報化社会を支えている各種デバイスの情報処理能力の向上は、シリコン MOS (metal-oxide-semiconductor) トランジスタのスケーリングによる高速化、高機能化により実現されてきた。1971 年の最初の 4 bit マイクロプロセッサ以来、約 18 ヶ月で集積度が 2 倍になるというムーアの法則に従って、半導体デバイスのサイズは縮小している。その結果、シリコンデバイスが高性能化し、携帯電話やパソコンなどの情報端末の性能は飛躍的に向上した。現在ではデバイスサイズの縮小に伴い、デバイス製造に莫大なコストがかかるという問題や、シリコン MOS トランジスタの微細化そのものの物理的な限界が表れてきており、微細化による高性能化が困難になりつつある。このため、Si よりも電子・ホール移動度の高い材料をチャネルとして用いることや、3 次元化したデバイス構造、MOS 構造の絶縁膜に高誘電材料を用いることにより、従来のスケーリング則を維持しようとする技術が研究されている。一方で、スケーリング則によらないデバイスの高機能化、高性能化を目指し、新しい動作原理に基づいた新機能デバイスの研究が進められている。その一例としてスピントロニクスが挙げられる。

スピントロニクスは従来のエレクトロニクスで用いられる電子の電荷に加えて、電子のスピンを活用することで従来にない機能を持ったデバイスの創出を目指す分野である。現在、このスピントロニクス分野が注目されている理由として、スピントロニクスデバイスが本質的に、不揮発性、低消費電力性、さらに、書き換え可能な論理機能を有するためである[1,2]。不揮発性は強磁性電極の有するヒステリシス特性に由来する。2007 年にノーベル物理学賞を受賞した A. Fert と P. J. Grünberg ら、それぞれのグループによる巨大磁気抵抗 (GMR : giant magnetoresistance) 効果の発見は、この分野の研究を活発にした代表的な研究成果の一つである[3,4]。GMR を利用した素子は 10 年程度で磁気記憶ディスクの読み出しヘッドとして実用化され、磁気記憶ディスクの記憶密度の向上に貢献した。また、同じく代表的なスピントロニクスデバイスの一つである強磁性トンネル接合 (MTJ : magnetic tunnel junction) は、不揮発、高速、低消費電力の RAM (Random Access Memory)、すなわち、MRAM (magnetic random access memory) として研究開発が行われ製品化されている[5]。また、不揮発性に伴い、論理回路の中に、MTJ をメモリとして組み込む事により、論理 LSI の低消費電力化にも有効である。さらに、電界効果トランジスタ (FET : Field effect transistor) のソース電極およびドレイン電極を強磁性電極により構成するスピントランジスタ[6]において、両電極の磁化の配置を平行か反平行かの 2 通りに制御する事により、論理機能を書き換え可能とし、かつ、この書き換えられた論理機能を不揮発にする事が可能となる。このように、スピントロニクスデバイスは様々な場面で研究され、製品化されている。特に、GMR 素子

や MTJ 素子はハードディスクドライブ(HDD : Hard Disk Drive)の磁気ヘッドとして古くから使われてきた。

現行の HDD の磁気ヘッドは、MgO トンネルバリアと CoFeB 強磁性電極を用いたコヒーレントトンネリングを活用する CoFeB/MgO/CoFeB MTJ が用いられている。これは MgO トンネル層によるスピントラ効果により高い MR 比、すなわち、高感度化が達成できるためである。しかしながら、TMR ヘッドでは素子面積 A の低減につれ、素子抵抗 R が増大する結果、高速応答が困難となり、また、ノイズの発生も大きくなる。そのため、次世代磁気ヘッドには、低い $R \cdot A$ 積と高い MR 比の両立が求められているが、現行の MgO-MTJ を用いた TMR ヘッドでは次世代の大容量 HDD、特に 2 Tbit/inch² 以降の HDD において必要とされる低い $R \cdot A$ 積を達成できない[7]。図 1 に 2 Tbit/inch² の HDD の磁気ヘッドに必要な MR 比と $R \cdot A$ 積の範囲と現行の MgO MTJ の MR 比と $R \cdot A$ 積の実験結果を示す。図 1 に示すように MgO MTJ の場合では、MR 比と $R \cdot A$ 積の有用な範囲に到達できない。そこで、MgO トンネル層を非磁性金属層で置き換えた、F/N/F の 3 層構造からなる電流面直型(current-perpendicular-to-plane)巨大磁気抵抗(GMR)素子(CPP GMR 素子)に注目が集まっている。

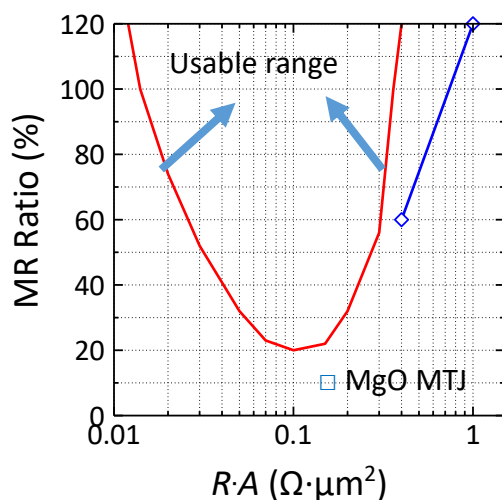


図 1. 2 Tbit/inch² の HDD の磁気ヘッドに必要な MR 比と $R \cdot A$ 積の範囲[7]。青色は MgO-MTJ における MR 比と $R \cdot A$ 積の実験結果。MgO-MTJ を用いた場合は、2 Tbit/inch² に必要な範囲には入らない。

しかしながら、CPP GMR 素子は全層が金属からなる素子構造のため $R \cdot A$ 積の低減に関しては有利であるが、強磁性電極に CoFe や Fe を用いた CPP GMR 素子では MR 比が数%程度しか得られていない。MR 比を増大させるにはスピン偏極率の大きな強磁性体を用いることが有効であり、そのような強磁性体としてハーフメタル強磁性体と呼ばれる物質群が知られている。

多数あるハーフメタル強磁性体の中でも、Co 基ホイスラー合金(Co_2YZ , Y は通常、遷移金属, Z は主族元素)[8-11]はスピントロニクスデバイスの強磁性電極として、大変注目を浴びている. Co 基ホイスラー合金のスピントロニクスデバイスへの応用研究は 2000 年台の前半から活発になり, MTJ[12-18]や GMR デバイス[19-26]に応用され, さらに最近では, 半導体チャネルへのスピン注入のスピン源[29-34]としても応用されており, これらのデバイス応用において, 優れたデバイス特性が報告されている.

一方で, Co 基ホイスラー合金のハーフメタル性を十分に活かすためには, ハーフメタル性に対する構造欠陥を明らかにすることが重要である. Picozzi らは, 第一原理計算より, Co 基ホイスラー合金の一種である Co_2MnSi (CMS)において, Co 原子が Mn サイトを置換する Co_{Mn} アンチサイトの影響によりフェルミレベル近傍に少数スピンバンド中に状態を有し, それが CMS のハーフメタル性を阻害することを理論的に明らかにした[35].

Ishikawa らは, CMS を用いた MTJ 素子における, TMR 比に対する CMS 薄膜の Mn 組成依存性を調べることで, CMS 薄膜が Mn-deficient な組成において Co_{Mn} アンチサイトが引き起こされるが, Mn-rich な組成では Co_{Mn} アンチサイトが抑制され, ハーフメタル性が向上することを実験的に明らかにした[12]. 図 2 に CMS を用いた MTJ 素子における, TMR 比に対する CMS 薄膜の Mn 組成依存性を示す. 図 2 に示すように, Mn 組成を増加させるにつれて, TMR 比が向上した[12,14]. この発見により, Mn-rich な組成の CMS 電極を用いた CMS/MgO/CMS MTJs (CMS MTJs)では 4.2 K で 1995%, 室温では 354%に達する TMR 比が実証されている[14].

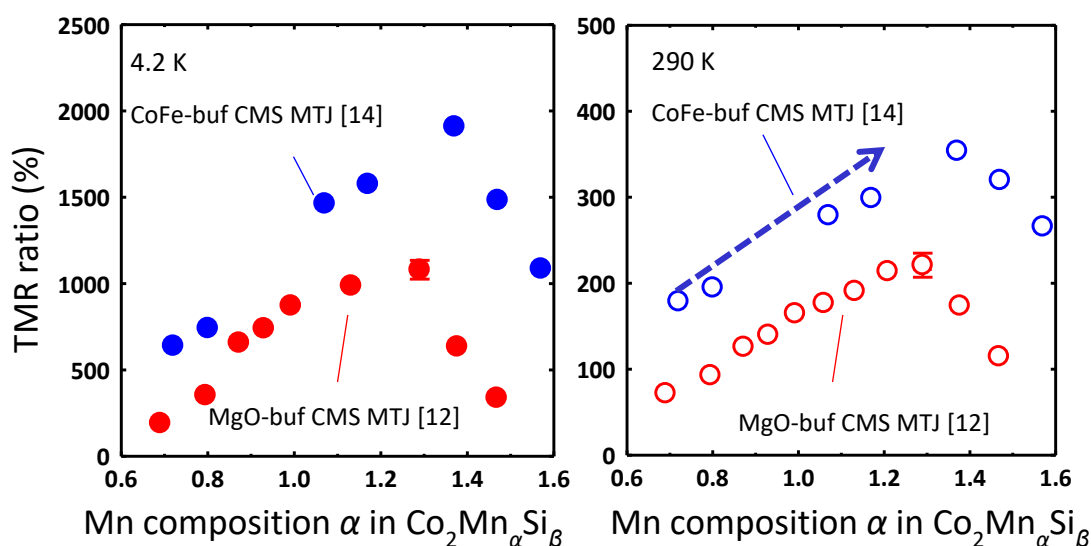


図 2. CMS 薄膜を用いた MTJ 素子の 4.2 K および 290 K の TMR 比に対する Mn 組成依存性 [12,14]. Mn 組成が増加するにつれて, TMR 比が向上した. この結果は Mn 組成を増加させることで, 構造欠陥である Co_{Mn} アンチサイトが抑制され, CMS 薄膜のスピン偏極率が向上した結果である.

これらの報告を契機に、Picozzi らが指摘した Co_{Mn} アンチサイトによる構造欠陥のハーフメタル性への影響を明らかにするために、CMS や CMFS, Co_2MnGe (CMG) のハーフメタル性に対する薄膜組成の影響に関して、様々な方法で調べられており、実験および第一原理計算から、Mn-deficient な組成において Co_{Mn} アンチサイトが引き起こされ、 Co_{Mn} アンチサイトが CMS のハーフメタル性に有害であること、また、Mn-rich な組成を用いることで、 Co_{Mn} アンチサイトが抑制されスピン偏極率が向上することが明らかとなった[12-17]。このように、Co 基ホイスラー合金のハーフメタル性を十分に活かすには Co アンチサイトを抑制することが重要であることが分かっているが、ホイスラー合金を用いた CPP GMR 素子における薄膜組成の影響に関する研究は十分なされていない。そのため、ホイスラー合金を用いた CPP GMR 素子では、Co 基ホイスラー合金の利点を十分に活かしていない可能性がある。

以上の背景から、本研究の目的は Co 基ホイスラー合金を用いた CPP GMR 素子におけるスピン依存伝導特性に対する薄膜組成の影響を明らかにすることである。そのため、異なる Mn 組成を持つ CMS、もしくは、異なる Ge 組成を持つ $\text{Co}_2\text{Fe}(\text{Ga},\text{Ge})$ (CFGG) を強磁性電極に用いた CPP GMR 素子を作製し、MR 特性や磁気的カップリングの強さに対する薄膜組成の影響について系統的に調べた。

本論文の構成は以下の通りである。第 2 節では、CMS を用いた CPP GMR 素子の MR 特性に対する Mn 組成依存性について述べる。 $\text{Co}_2\text{Mn}_\alpha\text{Si}_{0.82}$ を用いた CPP GMR 素子の Mn 組成 α を Mn-deficient な組成($\alpha = 0.62$)から Mn-rich な組成($\alpha = 1.45$)まで系統的に変化させた素子を作製し、その MR 比が Mn 組成とともに単調に増加することを見出した。この結果は GMR 構造においても CMS 薄膜を Mn-rich 組成にすることで、ハーフメタル性に有害な Co_{Mn} アンチサイトが抑制され、スピン偏極率が向上することを示唆している。そのため、MTJ と同様に、Mn-rich な組成の CMS を CPP GMR 素子に用いることが有用であることを実証した。一方で、この時得られた最大の MR 比は室温にて 20.7% であり、Mn-rich 組成の有用性は限定的であった。

この原因を明らかにするために、第 3 節では、CMS を用いた CPP GMR 素子の MR 特性およびスピン移行トルクスイッチング(STT)特性の (1) Mn 組成依存性、(2) 極薄 CoFe 挿入層の効果、(3) 温度依存性、について述べる。これにより、CMS 層中の Mn 原子が Ag スペーサー層へ拡散することにより、上下の強磁性層間に磁気的結合が生じ、完全な反平行状態が形成されにくいこと、および、スペーサー層のスピン拡散長が低下することが原因で、MR 比の向上が妨げられていることを示唆する結果が得られた。これらのことから、スペー

サー層への Mn 原子の拡散を防ぐことが更なる MR 比向上にむけて重要であるとの知見を得た。

第4節では Mn 原子の拡散の影響を排除するため、Mn 原子を含まないホイスラー合金である CFGG に着目し、CFGG の組成制御による MR 特性への影響について調べた。具体的には、 $\text{Co}_2\text{Fe}_{1.03}\text{Ga}_{0.41}\text{Ge}_\gamma$ に対して Ge-deficient な組成($\gamma = 0.24$)から Ge-rich な組成($\gamma = 1.06$)まで系統的に変化させた素子、および、 $\text{Co}_2\text{Fe}_{1.06}\text{Ga}_{0.44}\text{Ge}_\gamma$ に対して $\gamma' = 1.24, 1.48$ の素子を作製し、その MR 比に対する Ge 組成依存性を評価した。その結果、Ge 組成 γ 増加させることで、平均の MR 比が 23.1% から 55.6% まで増大することが示され、次世代磁気ヘッドに必要な高い MR 比と低い $R \cdot A$ 積を満たす結果が得られた。

最後に第5節において、本研究で得られた結論をまとめる。

2. Co_2MnSi を用いた CPP GMR 素子における磁気抵抗特性に対する薄膜組成の影響

CMS を用いた CPP GMR 素子における磁気抵抗特性に対する薄膜組成の影響について述べる。図 3(a) に本実験で作製した層構造を示す。異なる Mn 組成をもつ CMS 強磁性層と Ag スペーサー層からなる GMR 層構造である。図 3(b) に Mn-rich な組成($\alpha = 1.45$)の CMS を用いた CPP GMR 素子の室温における典型的な MR 特性を示す。素子の接合面積 A は $100 \times 50 \text{ nm}^2$ である。明瞭な MR 特性が得られており、その MR 比は 20.7% である。また $R_P \cdot A$ と $\Delta R \cdot A$ はそれぞれ $15.0 \text{ m}\Omega \cdot \mu\text{m}^2$ と $3.1 \text{ m}\Omega \cdot \mu\text{m}^2$ である。図 3(c) には室温における MR 比に対する Mn 組成 α の依存性を示す。図に示すように、Mn-deficient な組成($\alpha = 0.62$)の MR 比は 11.4% であり、Mn-rich な組成($\alpha = 1.45$)の MR 比は 20.7% となっており、Mn 組成の増加に従い MR 比が向上していることがわかった。

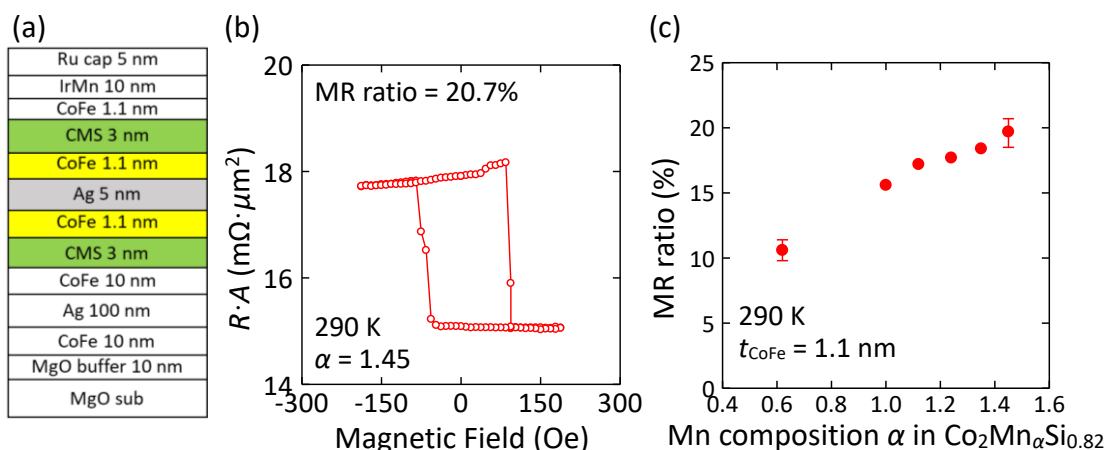


図 3. 本実験で作製した GMR 素子の層構造。 (b) Mn-rich 組成($\alpha = 1.45$)の CMS 薄膜を用いた CPP GMR 素子の 290 K での典型的な MR カーブ。 (c) 290 K における CMS を用いた CPP GMR 素子の MR 比に対する Mn 組成依存性。 $\text{Co}_2\text{Mn}_\alpha\text{Si}_{0.82}$ 強磁性電極の組成は $\alpha = 0.62$ から 1.45 まで変化させた。 Mn 組成が増加するにつれて MR 比も増加した。

MR 特性に対する CMS 薄膜の非化学量論組成に伴う、構造欠陥の影響について考察を行う。図 4 に 290 K における CMS を用いた CPP GMR 素子の MR 比に対する (Mn+Si) 組成依存性と CMS を用いた MTJ 素子の TMR 比に対する (Mn+Si) 組成依存性を示す[12,14]。CPP GMR 素子の MR 比は、以前に報告された MTJ 素子における TMR 比と同様の傾向を示していることが分かる。この結果は、CMS および CMFS を用いた MTJ に対する結果と同様の傾向を示しており、Mn 組成を Mn-deficient 組成から Mn-rich 組成に増加させることで CMS 強磁性電極のスピンの偏極率が連続的に上昇することを示唆している。この結果は CPP GMR 素子においても Mn-rich な組成を用いることで、CMS のハーフメタル性に有害な Co_{Mn} アンチサイトを抑制できることを意味している。

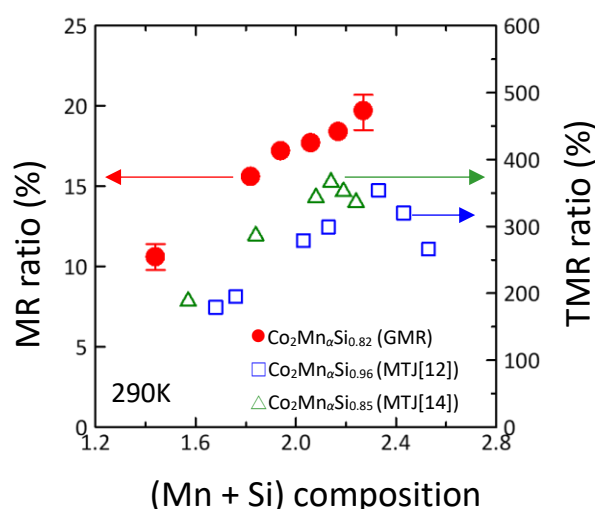


図 4. 290 K における CMS を用いた CPP GMR 素子および MTJ 素子[12,14]の MR 比に対する薄膜組成依存性. CPP GMR 素子の MR 比は、MTJ 素子における TMR 比と同様に、薄膜組成が増加するにつれ MR 比が向上する傾向を示している。

一方で、得られた GMR 素子の MR 比は 20.7%であり、MTJ 素子の MR 比から期待できるような高い MR 比ではなかった。この原因を明らかにするため、CMS 薄膜を用いた CPP GMR 素子における MR 比に対する温度依存性を調べた。図 5 に、 $\alpha = 0.62, 1.0, 1.45$ の 3 種類の CPP GMR 素子における MR 比に対する温度依存性を示す。図 5 に示すように、 $\alpha = 1.45$ の CPP GMR 素子の MR 比は、290 K から約 220 K までは温度が低下するとともに増加し、220 K 以下では急激に減少した。また、他の Mn 組成の CPP GMR 素子において、MR 比が急激に減少する温度が異なるものの、同様の結果が得られている。このような低温領域における MR 比の低下は他の Co 基ホイスラー合金を用いた CPP GMR 素子でも報告されている[21-25]。

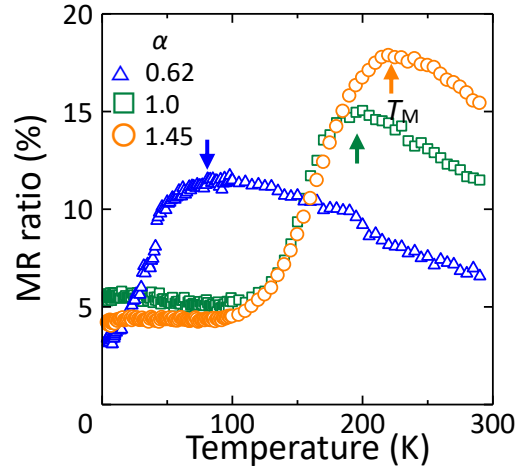


図 5. $\alpha = 0.62, 1.0, 1.45$ の CMS 薄膜を用いた CPP GMR 素子における, MR 比に対する温度依存性.

3. Co_2MnSi を用いた CPP GMR 素子における磁気的カップリングの起源

CPP GMR 素子における MR 比に対する温度依存性の結果から, CMS 薄膜を用いた CPP GMR 素子ではなんらかの影響でハーフメタル性を十分に活かすことが出来ていないことが分かった. この原因を明らかにするため, CMS を用いた CPP GMR 素子について, MR 特性と STT 特性の (a) CMS の Mn 組成依存性, (b) 極薄 CoFe 挿入層の効果, (c) 温度依存性について系統的に調べた. 本実験において, CMS 強磁性電極と Ag スペーサー層の間に CoFe 挿入層がない層構造(シリーズ A)と CoFe 挿入層がある層構造(シリーズ B)の 2 種類の層構造を作製した.

図 6 にシリーズ A の素子に対する室温での MR 特性と STT 特性を示す. それぞれの図に対して, 赤線が MR 特性で黒線が STT 特性である. また, 縦軸は抵抗であり, 横軸の下側は MR 特性を得る際に掃引した磁場の大きさを, 横軸の上側は STT 特性を測定する際の接合を流れる電流の密度を表している. 図 6(a)と(b)はシリーズ A の Mn-deficient 組成($\alpha = 0.62$), Mn-rich 組成($\alpha = 1.40$)の素子特性である. 図 6 に示すように, すべての素子において, MR 特性と STT 特性の両方で明瞭な抵抗変化が観測された.

STT 特性で得られた高抵抗状態の抵抗値を $R_{\text{AP}}^{(\text{STT})}$, MR 特性で得られた高抵抗状態の抵抗値を $R_{\text{AP}}^{(\text{Mag})}$ と定義すると, 図 6 に示すように, シリーズ A の素子では, $R_{\text{AP}}^{(\text{STT})} > R_{\text{AP}}^{(\text{Mag})}$ となった. このことは, 磁場掃引では上下の強磁性層間の磁化の角度(θ)は完全な反平行状態となる 180° ではなく, STT の印加により, θ がより反平行状態となる 180° に近くことを示唆している. また, このことは, Goripati らの先行研究で指摘されている通り, 90° カップリングが存在しているからであると言える. 言い換えれば, $R_{\text{AP}}^{(\text{STT})} > R_{\text{AP}}^{(\text{Mag})}$ となる場合は 90° カップリングが存在することを意味する.

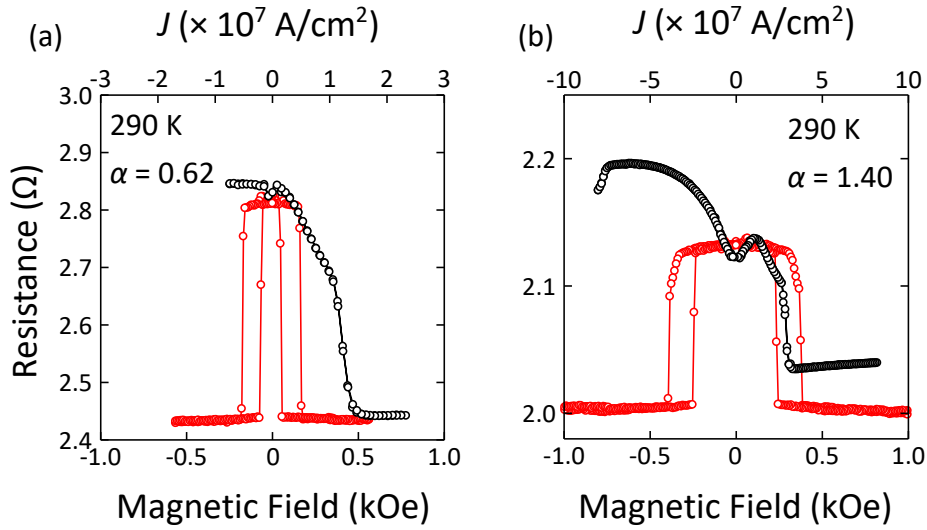


図 6. CMS を用いた CPP GMR 素子に対する 290 K の MR 特性と STT 特性の結果. (a) $\alpha = 0.62$ のシリーズ A (CoFe 挿入層なし) の素子. (b) $\alpha = 1.40$ のシリーズ A の素子.

90°カップリングの強さを表す指標として、 $R_{AP}^{(STT)}$ と $R_{AP}^{(Mag)}$ の比により定義したファクター $r (= R_{AP}^{(STT)} / R_{AP}^{(Mag)})$ を導入する. r の値が大きくなると 90°カップリングが強いということを意味している. 図 7(a) に室温のシリーズ A と B のファクター r に対する CMS 薄膜の Mn 組成依存性を示す. シリーズ A では Mn 組成 α が増加するにつれてファクター r が増加した. これは、Mn 組成が増加するにつれて 90°カップリングが強くなることを意味している. 一方で、シリーズ B では、室温での r の値は Mn 組成 α にかかわらずほぼ一定であった. このことは、室温における 90°カップリングは極薄 CoFe 層の挿入により抑制されたことがわかる.

図 7(b) にシリーズ B の素子における室温と 4.2 K でのファクター r の Mn 組成依存性を示す. シリーズ B の異なる Mn 組成を持つ全ての素子において、室温から 4.2 K に温度が低下すると、 r の値が大きくなった. これは 90°カップリングの強さは室温ではほとんど無視できるくらい小さいのに対し、4.2 K では増強されることを意味している. このように、90°カップリングの強さに対して、強い温度依存性を示していることから、この 90°カップリングは loose spin model に当てはまっていることがわかる. また、この結果はこれまでの先行研究の結果と同様である. さらに興味深いことに、4.2 K でのファクター r の値は Mn 組成が増加するにつれて増加し、 $\alpha = 1.40$ では、 r が 1.3 まで達した.

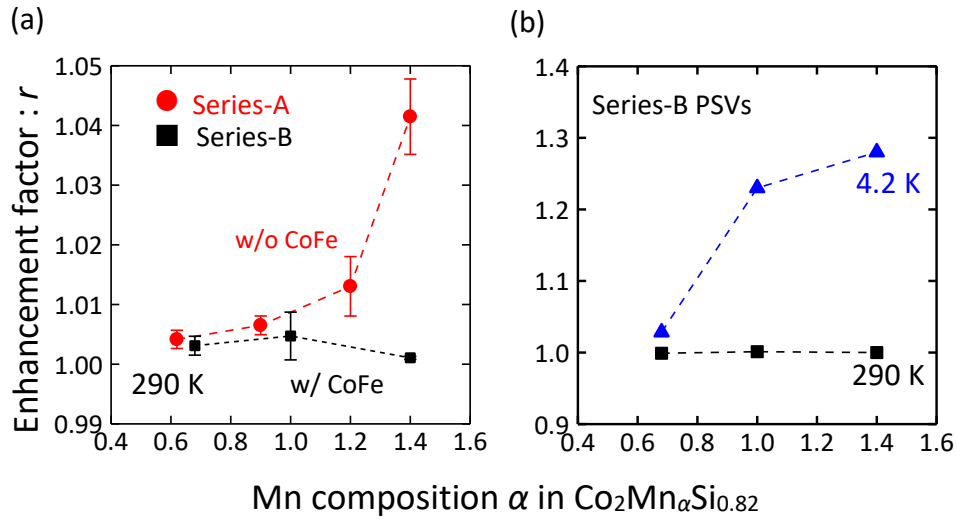


図 7. (a) 室温でのシリーズ A と B の素子におけるファクター r に対する Mn 組成依存性. シリーズ A では Mn 組成が増加するとともに r の値が増加している. 一方で, シリーズ B では Mn 組成にかかわらず r の値は一定である. (b) 室温と 4.2 K でのシリーズ B の素子におけるファクター r に対する Mn 組成依存性. シリーズ B の全ての素子において, 室温から 4.2 K に温度を低下させると, r の値が大きくなった.

シリーズ A, B の両方の層構造において, Mn 組成の増加につれて 90° カップリングが強くなることから, Ag スペースャ層に拡散した Mn 原子もしくは F/N の界面に存在する Mn 原子が loose spin であることが考えられる. まず後者の可能性について考える. シリーズ B の素子では, CMS 強磁性電極と Ag スペースャ層の界面には極薄 CoFe 層を挿入しており, 界面の構造がすべて同一であることから, 界面には Mn 原子が存在しない. そのため, 界面の Mn 原子が loose spin でありそれが 90° カップリングを引き起こすというケースは, 4.2 K のシリーズ B の実験結果を説明することが出来ない. 一方で, 前者, すなわち Mn 原子が拡散する場合, 界面で Mn の拡散が終わることは考えられない. そのため, loose spin は Ag スペースャ層に拡散した Mn 原子であることが考えられる. これより, CMS 強磁性電極から Ag スペースャ層へ拡散した Mn 原子により, 90° カップリングが起こることが分かった. また, Ag スペースャ層へ拡散した Mn 原子により Ag のスピン拡散長が低下することで, MR 比の向上が妨げられていることが示唆された.

これらの結果から, Mn 原子の拡散を防ぐことが更なる MR 比向上にむけて重要であることがわかった. そのため, Mn 原子の拡散を完璧に防ぐこと, もしくは Mn 原子を含まない Co 基ホイスラー合金を用いることが, 高い MR 比を実証する方法であると言える.

4. Co₂Fe(Ga,Ge)を用いた CPP GMR 素子における磁気抵抗特性に対する薄膜組成の影響

CMS を用いた CPP GMR 素子において、CMS 層からの Mn 原子の拡散により、磁気的カップリングが生じること、また、Ag のスピン拡散長が低下することにより、MR 比の向上が妨げられていることが分かった。これらの結果は、Mn 原子の拡散を防ぐこと、もしくは、Mn 原子を含まないホイスラー合金を用いることが、高い MR 比を実証することが出来ることを意味している。実際、上記の事を裏付けるように、Mn 原子を含まない Co 基ホイスラー合金である Co₂Fe(Ga,Ge) (CFGG)を用いた CPP GMR 素子において、比較的高い MR 比が報告されている[26,27]。しかしながら、CMS を用いた CPP GMR 素子とは異なり、CFGG の MR 特性に対する薄膜組成の影響については明らかにされていない。このために、我々は異なる Ge 組成を持つ CFGG 電極と Ag スペーサー層からなる保磁力差型の CPP GMR 素子を作製し、その MR 比に対する Ge 組成依存性を調べた。

その結果、化学量論組成である $\gamma = 0.56$ の時の平均の MR 比は 23.1%であるのに対し、Ge-rich 組成である $\gamma = 1.06$ の時の平均の MR 比は 55.6%、最大では 88.2%となり、Ge 組成の増加に従い MR 比が向上する結果が得られた。一方で Ge 組成をさらに過剰にすると、MR 比が低下した。これは Ge 組成が増加することで、Ag スペーサー層へ Ge 原子が拡散することで Ag のスピン拡散長が低下したことや結晶構造が崩れたことなどが考えられる。また、NiAl 挿入層が無い層構造においても、Ge-deficient 組成($\gamma=0.24$)の MR 比は 11%であり、Ge-rich 組成($\gamma=1.06$)の MR 比は 33%となり、Ge 組成の増加に伴い MR 比が向上していることがわかった。これらの結果から、Ge 組成が増加することでスピン偏極率が上昇することを示唆している。このことは、CMS 薄膜を用いた CPP GMR 素子と同様に、Ge-rich 組成にすることで、ハーフメタル性に有害な Co アンチサイトが抑制できたことによる影響であると理解することが出来る。

これらの結果は、第 2 節で述べた CMS 薄膜を用いた CPP GMR 素子における MR 比の Mn 組成依存性や、MTJ 素子における TMR 比の Mn 組成依存性と同様の傾向を示しており、過去の結果からも CFGG 強磁性電極の Ge 組成を増加させることで Co アンチサイトを抑制し、CFGG 薄膜のスピン偏極率が向上したことを示唆している。また、本研究で得られた平均の MR 比は 55.6%、 $R \cdot A$ 積の値は $0.105 \text{ } \Omega \cdot \mu\text{m}^2$ であり、次世代磁気ヘッドの要求水準を満たす結果が得られた。

5. まとめ

本研究では、Co 基ホイスラー合金を用いた CPP GMR 素子におけるスピン依存伝導特性に対する薄膜組成の影響を明らかにすることを目的に、異なる Mn 組成を持つ CMS、もしくは、異なる Ge 組成を持つ CFGG を強磁性電極に用いた CPP GMR 素子を作製し、MR 特性や磁気的カップリングの強さに対する薄膜組成の影響について系統的に調べた。その結果、以下の事が分かった。

第 2 節では CMS を用いた CPP GMR 素子の MR 比に対する Mn 組成依存性について明らかにした。Mn 組成 α を Mn-deficient な組成($\alpha = 0.62$)から Mn-rich な組成($\alpha = 1.45$)に増加させることで、作製した CPP GMR 素子の室温における MR 比は 11.4%から 20.7%まで系統的に増加した。この結果は Mn 組成が Mn-deficient 組成から Mn-rich 組成に増加することで、ハーフメタル性に有害な Co_{Mn} アンチサイトが抑制され、スピン偏極率が向上することを示唆している。そのため、Mn-rich な組成の CMS を用いた MTJ と同様に、CMS のハーフメタル性を十分に活用するために Mn-rich な組成の CMS を CPP GMR 素子に用いることが有用であることを実証した。一方で、CMS を用いた MTJ 素子で得られた結果から期待されるほどの MR 比ではなく、Mn-rich 組成の有用性は限定的であった。

第 3 節では、Mn-rich 組成の有用性が限定的であった原因の一つである、上下の強磁性電極間に働く磁気的カップリング(90° カップリング)の起源を明らかにした。具体的には異なる Mn 組成をもつ CMS を強磁性電極に用いた CPP GMR 素子を作製し、その MR 特性とスピン移行トルクスイッチング(STT)特性より、 90° カップリングの強さに対する (1) Mn 組成依存性, (2) 極薄 CoFe 層, (3) 温度依存性, について系統的に調べた。その結果, CPP GMR 素子における 90° カップリングの強さは, (a) Mn 組成の増加とともに強くなること, (b) CMS 強磁性電極と Ag スペーサー層の界面に極薄 CoFe 層を挿入することで弱くなること, (c) 低温では顕著に強くなること, がわかった。このことから、 90° カップリングは CMS 強磁性電極から Ag スペーサー層へ拡散した Mn 原子により起こることが分かった。また、拡散された Mn 原子により Ag のスピン拡散長が低下することで、MR 比の向上が妨げられていることが示唆された。これらのことから、Mn 原子の拡散を防ぐことが更なる MR 比向上にむけて重要であることがわかった。

第 4 節では、Mn を含まない CFGG を強磁性電極に用いた CPP GMR 素子を作製し、その MR 比に対する Ge 組成依存性を明らかにした。Ge 組成 γ を Ge-deficient な組成から Ge-rich な組成に増加させること、作製した CPP GMR 素子の室温における平均の MR 比が 23.1%から 55.6%まで増大し、さらに最大で 88.2%となる MR 比が得られた。この結果は Ge 組成が Ge-deficient 組成から Ge-rich 組成に増加することで、ハーフメタル性に有害な Co アンチ

サイトが抑制され, スピン偏極率が向上することを示唆している. CFGG を用いた CPPGMR 素子において, MR 比が 55.6%, $R \cdot A$ 積の値が $0.105 \, \Omega \cdot \mu\text{m}^2$ の特性が得られ, 次世代磁気ヘッドに必要な水準を満たす結果が得られた.

参考文献

- [1] S. A. Wolf, D. D. Awschalom, R. A. Buhrman, J. M. Daughton, S. von Molnár, M. L. Roukes, A. Y. Chtchelkanova, and D. M. Treger, *Science* **294**, 1488 (2001).
- [2] I. Žutić, J. Fabian, and S. Das Sarma, *Rev. Mod. Phys.* **76**, 323 (2004).
- [3] P. Grünberg, R. Schreiber, Y. Pang, M.B. Brodsky, H. Sowers, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 2442 (1986).
- [4] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Eitenne, G. Creuzet, A. Friederich, and J. Chazelas, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2472 (1988).
- [5] S. Tehrani, J. M. Slaughter, E. Chen, M. Durlam, J. Shi, and M. DeHerrera, *IEEE Trans. Magn.* **35**, 2814 (1999).
- [6] S. Sugahara and M. Tanaka, *Appl. Phys. Lett.* **84**, 2307 (2004).
- [7] M. Takagishi, K. Yamada, H. Iwasaki, H. N. Fuke, and S. Hashimoto, *IEEE Trans. Magn.* **46**, 2086 (2010).
- [8] S. Ishida, S. Fujii, S. Kashiwagi, and S. Asano, *J. Phys. Soc. Jpn.* **64**, 2152 (1995).
- [9] S. Piccozzi, A. Continenza, and A. J. Freeman, *Phys. Rev. B* **66**, 094421 (2002).
- [10] I. Galanakis, P. H. Dederichs, and N. Papanikolaou, *Phys. Rev. B* **66** 174429 (2002).
- [11] P. J. Webster, *J. Phys. Chem. Solids* **32**, 1221 (1971).
- [12] T. Ishikawa, H.-x. Liu, T. Taira, K.-i. Matsuda, T. Uemura, and M. Yamamoto, *Appl. Phys. Lett.* **95**, 232512 (2009).
- [13] M. Yamamoto, T. Ishikawa, T. Taira, G.-f. Li, K.-i. Matsuda, and T. Uemura, *J. Phys.: Condens. Matter* **22**, 164212 (2010).
- [14] H.-x. Liu, Y. Honda, T. Taira, K.-i. Matsuda, M. Arita, T. Uemura, and M. Yamamoto, *Appl. Phys. Lett.* **101**, 132418 (2012).
- [15] G.-f. Li, Y. Honda, H.-x. Liu, K.-i. Matsuda, M. Arita, T. Uemura, M. Yamamoto, Y. Miura, M. Shirai, T. Saito, F. Shi, and P. M. Voyles, *Phys. Rev. B* **89**, 014428 (2014).
- [16] H.-x. Liu, T. Kawami, K. Moges, T. Uemura, M. Yamamoto, F. Shi, and P. M. Voyles, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **48**, 164001 (2015).
- [17] K. Moges, Y. Honda, H.-x. Liu, T. Uemura, M. Yamamoto, Y. Miura, and M. Shirai, *Phys. Rev. B* **93**, 134403 (2016).
- [18] B. Hu, K. Moges, Y. Honda, H.-x. Liu, T. Uemura, M. Yamamoto, J. Inoue, and M. Shirai, *Phys. Rev. B* **94**, 094428 (2016).
- [19] T. Furubayashi, K. Kodama, H. Sukegawa, Y. K. Takahashi, K. Inomata, and K. Hono, *Appl. Phys. Lett.* **93**, 122507 (2008).

- [20] Y. Sakuraba, K. Izumi, T. Iwase, S. Bosu, K. Saito, K. Takanashi, Y. Miura, K. Futatsukawa, K. Abe, and M. Shirai, Phys. Rev. B **82**, 094444 (2010).
- [21] T. Furubayashi, K. Kodama, T. M. Nakatani, H. Sukegawa, Y. K. Takahashi, K. Inomata, and K. Hono, J. Appl. Phys. **107**, 113917 (2010).
- [22] Y. Sakuraba, K. Izumi, S. Bosu, K. Saito, and K. Takanashi, J. Phys. D: Appl. Phys. **44**, 064009 (2011).
- [23] H. S. Goripati, M. Hayashi, T. Furubayashi, T. Taniguchi, H. Sukegawa, Y. K. Takahashi, and K. Hono, J. Appl. Phys. **110**, 123914 (2011).
- [24] M. J. Carey, S. Maat, S. Chandrashekariaih, J. A. Katine, W. Chen, B. York, and J. R. Childress, J. Appl. Phys. **109**, 093912 (2011).
- [25] Y. Sakuraba, M. Ueda, Y. Miura, K. Sato, S. Bosu, K. Saito, M. Shirai, T. J. Konno, and K. Takanashi, Appl. Phys. Lett. **101**, 252408 (2012).
- [26] S. Li, Y. K. Takahashi, T. Furubayashi, and K. Hono, Appl. Phys. Lett. **103**, 042405 (2013).
- [27] J. W. Jung, Y. Sakuraba, T. T. Sasaki, Y. Miura, and K. Hono Appl. Phys. Lett. **108**, 102408 (2016).
- [28] S. Li, Y. K. Takahashi, Y. Sakuraba, N. Tsuji, H. Tajiri, Y. Miura, J. Chen, T. Furubayashi, and K. Hono, Appl. Phys. Lett. **108**, 122404 (2016).
- [29] T. Akiho, J. Shan, H.-x. Liu, K.-i. Matsuda, M. Yamamoto, and T. Uemura, Phys. Rev. B **87**, 235205 (2013).
- [30] Y. Ebina, T. Akiho, H.-x. Liu, M. Yamamoto, and T. Uemura, Appl. Phys. Lett. **104**, 172405 (2014).
- [31] T. Uemura, T. Akiho, Y. Ebina, and M. Yamamoto, Phys. Rev. B **91**, 140410(R) (2015).
- [32] Z. Lin, M. Rasly, and T. Uemura, Appl. Phys. Lett. **110**, 232404 (2017).
- [33] M. Rasly, Z. Lin, and T. Uemura, Phys. Rev. B **96**, 184415 (2017).
- [34] Z. Lin, D. Pan, M. Rasly, and T. Uemura, Appl. Phys. Lett. **114**, 012405 (2019).
- [35] S. Picozzi, A. Continenza, and A. J. Freeman, Phys. Rev. B **69**, 094423 (2004).